

10/552368

JC05 Rec'd PCT/PTO 07 OCT 2005

DOCKET NO.: 278930US0XPCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Fiorenzo RENZI, et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/EP04/03673

INTERNATIONAL FILING DATE: April 6, 2004

FOR: LIQUID COMPOSITION POLYMERIZABLE INTO ORGANIC GLASS HAVING GOOD
OPTICAL AND PHYSICO-MECHANICAL CHARACTERISTICS

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Commissioner for Patents
Alexandria, Virginia 22313

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that
the applicant claims as priority:


COUNTRY
Italy

APPLICATION NO
MI2003A 000758

DAY/MONTH/YEAR
11 April 2003

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the
International Bureau in PCT Application No. PCT/EP04/03673. Receipt of the certified
copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been
acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423

Customer Number
22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 08/03)

17. 05. 2004

Mod. C.E. - 1-4-7

MODULARIO
L.C.A. - 101

REC'D 07 JUN 2004

WIPO

PCT

Ministero delle Attività Produttive
Direzione Generale per lo Sviluppo Produttivo e la Competitività
Ufficio Italiano Brevetti e Marchi
Ufficio G2

Autenticazione di copia di documenti relativi alla domanda di brevetto per: **Invenzione Industriale**
N. **MI2003 A 000758**



*Si dichiara che l'unità copia è conforme ai documenti originali
depositati con la domanda di brevetto sopraspecificata, i cui dati
risultano dall'accluso processo verbale di deposito.*

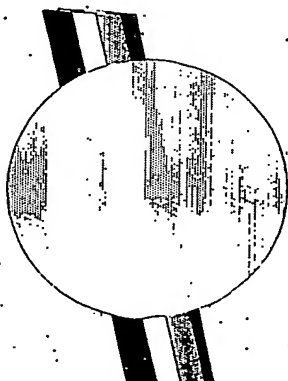
8 APR. 2004

Roma, il

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

IL FUNZIONARIO

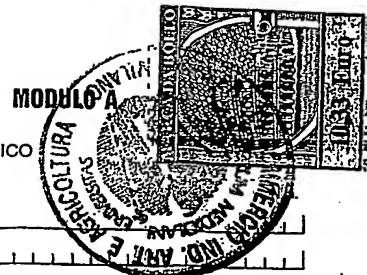
Giampietro Carlotta
Giampietro Carlotta



AL MINISTERO DELLE ATTIVITÀ PRODUTTIVE

UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI - ROMA

DOMANDA DI BREVETTO PER INVENZIONE INDUSTRIALE, DEPOSITO RISERVE, ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO



A. RICHIEDENTE (I)

1) Denominazione GREAT LAKES CHEMICAL (EUROPE) GMBH

Residenza FRAUENFELD SVIZZERA

codice

2) Denominazione

Residenza

codice

B. RAPPRESENTANTE DEL RICHIEDENTE PRESSO L'U.I.B.M.

cognome nome DE GREGORI Antonella e altri

cod. fiscale

denominazione studio di appartenenza ING. BARZANO & ZANARDO MILANO S.p.A.

via BORGONUOVO

n.

1

0

città

MILANO

cap

20121

(prov)

MI

C. DOMICILIO ELETTIVO destinatario

via

n.

1

città

cap

(prov)

MI

D. TITOLO

classe proposta (sez/cl/sci)

1

1

1

gruppo/sottogruppo

1

1

1

COMPOSIZIONE LIQUIDA POLIMERIZZABILE IN VETRI ORGANICI DOTATI DI BUONE
PROPRIETÀ OTTICHE E FISICO-MECCANICHE

ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO:

SI

NO

☒

SE ISTANZA: DATA

1

1

1

N° PROTOCOLLO

1

1

E. INVENTORI DESIGNATI

cognome nome

☒

SE ISTANZA: DATA

1

1

1

N° PROTOCOLLO

1

1

1) RENZI FIORENZO

3)

POSTMUS SIMON

2) BOS WILLEM

4)

FORESTIERI ROBERTO

F. PRIORITÀ

nazione o organizzazione

tipo di priorità

numero di domanda

data di deposito

allegato
S/R

1)

2)

SCIoglimento RISERVE

Data

N° Protocollo

G. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA COLTURE DI MICROORGANISMI, denominazione

H. ANNOTAZIONI SPECIALI

DOCUMENTAZIONE ALLEGATA

N. es.

Doc. 1) ☒ PROV n. pag. 44

riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)

Doc. 2) ☒ PROV n. tav. 1

disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare)

Doc. 3) ☒ RIS

lettera d'incarico, procura o riferimento procura generale

Doc. 4) ☒ RIS

designazione inventore

Doc. 5) ☒ RIS

documenti di priorità con traduzione in italiano

Doc. 6) ☒ RIS

autorizzazione o atto di cessione

Doc. 7) ☒

nominativo completo del richiedente

8) attestati di versamento, totale Euro DUECENTONOVANTUNO/80

COMPILATO IL 11/11/14 12.01.3

FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE(I)

I MANDATARI (firma per sé e per gli altri)

CONTINUA SI/NO

NO

DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO

SI

CAMERA DI COMMERCIO IND. ART. E AGR. DI MILANO

MILANO

VERBALE DI DEPOSITO

MI2003A 000758

codice 1.5

DUEMILATRE

UNDICI

Rcg. A.

APRILE

L'anno

del mese di

Il(I) richiedente(i) sopra indicato(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda di brevetto per invenzione industriale, depositata con riserva.

100 fogli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.

I. ANNOTAZIONI VARIE DELL'UFFICIALE ROGANTE IL RAPPRESENTANTE INFORMATO DEL CONTENUTO DELLA

CIRCOLARE N. 423 DEL 01/03/2003 EFFETTUA IL DEPOSITO CON RISERVA

DI LETTERA D'INCARICO.

IL DEPOSITANTE

L'UFFICIALE ROGANTE

CORTONEST

RIASSUNTO INVENZIONE CON DISEGNO PRINCIPALE, DESCRIZIONE E RIVENDICAZIONE

NUMERO DOMANDA

1112003A000758

REG. A

DATA DI DEPOSITO

11/04/2003

NUMERO BREVETTO

DATA DI RILASCIO

11/11/1111

D. TITOLO

"Composizione liquida polimerizzabile in vetri organici dotati di buone proprietà ottiche e fisico-meccaniche".

L. RIASSUNTO

E' descritta una composizione liquida polimerizzabile, per via radicalica in vetri organici, comprendente: 1) il prodotto ottenuto dalla transesterificazione del diallilcarbonato (A) con una miscela di uno o più dioli (B) alifatici, lineari o ramificati contenenti da tre a dieci atomi di carbonio nella molecola, con un poliolo (C) alifatico, lineare o ramificato contenente da quattro a venti atomi di carbonio e da tre a sei gruppi ossidrilici nella molecola, in una concentrazione globale compresa tra 70 e 100% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2); 2) uno o più comonomeri di tipo acrilico, metacrilico, vinilico o allilico o loro miscele, in una concentrazione globale compresa tra 0 e 30% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2); 3) un iniziatore di polimerizzazione o una miscela di due o più iniziatori di polimerizzazione stabili a temperatura ambiente appartenenti alla classe dei perossidi, in una concentrazione globale compresa tra 0,03 a 0,1 moli per 1 Kg di composizione finale.

M. DISEGNO

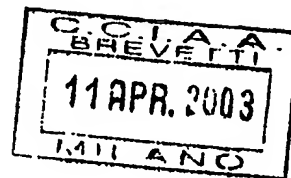


DESCRIZIONE dell'invenzione industriale **MI 2003 A 0 0 0 7 5 8**

a nome: GREAT LAKES CHEMICAL (Europe) GmbH

di nazionalità: Svizzera

con sede in: Frauenfeld - Svizzera



La presente invenzione riguarda una composizione liquida polimerizzabile in vetri organici dotati di buone proprietà ottiche e fisico-meccaniche.

Più in particolare la presente invenzione riguarda una composizione liquida, polimerizzabile, per via radicalica, in vetri organici dotati di buone proprietà ottiche e fisico-meccaniche, comprendente il prodotto ottenuto dalla transesterificazione del diallilcarbonato (A) con una miscela di uno o più dioli (B) con un poliolo (C), in presenza di iniziatori perossidici stabili a temperatura ambiente ed eventualmente di uno o più comonomeri reattivi.

Ulteriore oggetto della presente invenzione sono i vetri organici ottenuti dalla polimerizzazione di detta composizione.

Infine, ulteriore oggetto della presente invenzione sono i manufatti ottenuti a partire da detta composizione quali, ad esempio, lenti oftalmiche e filtri solari, schermi protettivi, oblò di visualizzazione, collettori e pannelli solari e

fotovoltaici, substrati per dischi ottici, pannelli per "displays" e videotermini.

Nel settore dei vetri organici ad elevata trasparenza, i vetri organici ottenuti dalla polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato) presentano un notevole interesse commerciale nella produzione di lastre e lenti oftalmiche e di sicurezza, grazie alle loro peculiari proprietà meccaniche e di resistenza all'invecchiamento, come descritto ad esempio da F. Strain, in: "Encyclopedia of Chemical Processing and Design", First Edition, Dekker Inc., New York, Vol. 11, pag. 452 e seguenti; e in "Encyclopedia of Polymer Science and Technology" (1964), Vol. 1, pag. 799 e seguenti, Interscience Publishers, New York.

Tuttavia, l'impiego del dietilenglicole bis(allilcarbonato) presenta alcuni inconvenienti che rendono il processo di produzione dei manufatti a base di tale composizione, sia rischioso dal punto di vista della sicurezza, sia economicamente oneroso.

Infatti, la reazione di polimerizzazione del monomero in questione viene condotta generalmente in presenza di iniziatori perossidici appartenenti alla famiglia dei dialchil-perossidicarbonati, come ad esempio il diisopropil-perossidicarbonato (IPP) o

miscele di IPP e di-s-butyl-perossidicarbonato che permettono di ottenere manufatti con ottime proprietà ottiche, in particolare trasparenza e bassa colorazione.

Tali perossidi hanno tuttavia lo svantaggio di essere estremamente costosi e molto instabili termicamente con decomposizione di tipo esplosivo, per cui richiedono condizioni molto severe nel trasporto e nello stoccaggio: è infatti necessario mantenere il perossido a temperature dell'ordine di -20°C .

Questi perossidi sono disponibili commercialmente anche diluiti nel monomero, in concentrazione variabile. Tale soluzione però, se da un lato consente di ridurre in parte i rischi sopra evidenziati connessi all'instabilità termica del perossido, non risolve tuttavia il problema di dover trasportare e stoccare il perossido a temperature sfavorevoli che, nel migliore dei casi, con una miscela contenente solo il 10% di perossido nel monomero, sono rispettivamente pari a -15°C e -10°C . Inoltre questa soluzione presenta l'inconveniente di aumentare notevolmente sia la quantità di iniziatore da stoccare e maneggiare giornalmente sia i costi di esercizio.

Per ovviare agli inconvenienti di cui sopra, sarebbe desiderabile disporre di perossidi stabili a temperatura ambiente, possibilmente allo stato puro o in forma concentrata.

Commercialmente sono disponibili perossidi che soddisfano questi requisiti ma, generalmente, non trovano applicazione pratica quali iniziatori di polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato) per diverse ragioni.

Ad esempio, nell'ambito dei diacilperossidi, il didecanoil-perossido e il dilauroil-perossido hanno una temperatura di stoccaggio favorevole ($\leq 30^{\circ}\text{C}$), ma presentano una scarsissima solubilità nel monomero e quindi non sono utili quali iniziatori di polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato).

Il dibenzoil-perossido ha una solubilità nettamente superiore rispetto ai precedenti perossidi, ma presenta altri inconvenienti. Esso, pur essendo stato infatti uno dei primi iniziatori radicalici proposto per questa applicazione, ha un uso molto limitato a causa dell'elevato ingiallimento delle lenti nel corso della polimerizzazione e della scarsa resistenza alla luce UV. Infatti lenti prodotte a partire dal dietilenglicole



bis(allilcarbonato) con l'impiego di dibenzoil perossido come iniziatore di polimerizzazione, tendono ad ingiallire sensibilmente anche dopo breve esposizione alla luce solare. L'aggiunta di additivi stabilizzanti alla luce consente di migliorare significativamente la stabilità UV, ma non risolve, anzi peggiora, il problema dell'ingiallimento delle lenti in polimerizzazione.

Altri perossidi stabili a temperatura ambiente appartengono alla classe degli alchil peresteri, come ad esempio il t-butilperossi-3,3,5-trimetil esanoato, il t-butilperossi-2-etil-esilcarbonato e il t-butilperossi benzoato. Essi hanno il vantaggio di essere liquidi e facilmente miscibili con il dietilenglicole bis(allilcarbonato), tuttavia non sono idonei quali iniziatori di polimerizzazione in quanto sono caratterizzati da temperature di decomposizione troppo elevate ($\geq 100^{\circ}\text{C}$) e, oltretutto, mostrano una efficienza non ottimale, fornendo lenti non completamente reticolate e con bassa durezza.

Infine, perossi-dicarbonati come il di(4-t-butil cicloesil)-perossi-dicarbonato e il dimiristil-perossi-dicarbonato che, potenzialmente, sono di grande interesse in quanto hanno una reattività molto

simile a quella dell'IPP, hanno lo svantaggio di essere poco solubili nel monomero e, data la loro relativamente bassa percentuale di ossigeno attivo (Active Oxygen Content, "AOC"), rispettivamente pari a circa 3.8% e 2.9%, contro il 7.7% dell'IPP, sarebbero necessarie elevate concentrazioni di perossido per il raggiungimento di proprietà fisico-meccaniche idonee all'applicazione nel settore ottico.

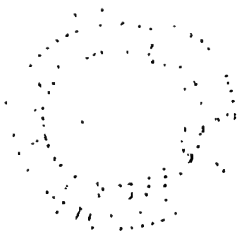
Per superare gli inconvenienti di cui sopra, un esperto del settore sarebbe tentato di sperimentare composizioni polimerizzabili contenenti quantità ridotte di perossidi stabili a temperatura ambiente tra quelli sopra menzionati, che potrebbero così rientrare entro i limiti di solubilità nel monomero dietilenglicole bis(allilcarbonato) e/o migliorare il colore dei vetri organici e/o la loro resistenza alle radiazioni UV.

Questa opzione non è tuttavia realizzabile in quanto i vetri organici ottenuti dalla polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato) in presenza di quantità ridotte di perossidi stabili a temperatura ambiente, risultano in generale dotati di scarse proprietà fisico-meccaniche, in particolare bassa durezza,

bassa temperatura di transizione vetrosa e scarsa resistenza all'abrasione e ai solventi chimici.

Per ovviare a ciò, e quindi permettere di operare con quantità ridotte di perossido, un esperto del settore potrebbe quindi scegliere di ridurre la densità di doppi legami polimerizzabili presenti nella composizione, ad esempio procedendo ad una prepolimerizzazione del monomero dietilenglicole bis(allilcarbonato) fino all'ottenimento di una viscosità 6-7 volte più elevata.

In tal modo, avendo conseguito una riduzione del numero di doppi legami che prendono parte alla reazione di polimerizzazione, ci si potrebbe aspettare un'analogia riduzione della quantità di perossido richiesta. Questa soluzione consente di migliorare le proprietà dei vetri organici prodotti con quantità ridotte di perossido stabile a temperatura ambiente, ma come sarà dimostrato negli esempi sperimentali che seguono, le proprietà fisico-meccaniche non sono ancora sufficientemente buone per trovare applicazione nel settore ottico. Inoltre operando in questo modo si va a peggiorare significativamente la solubilità del perossido nella composizione polimerizzabile.



La Richiedente ha ora sorprendentemente trovato che è possibile produrre vetri organici dotati di buone proprietà ottiche e fisico-meccaniche, a partire da una composizione liquida polimerizzabile in presenza di una quantità di iniziatore di polimerizzazione, stabile a temperatura ambiente, significativamente inferiore sia a quella richiesta per la polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato), sia a quella ipotizzabile sulla base della densità di doppi legami polimerizzabili della composizione stessa.

In particolare è stato sorprendentemente trovato che l'efficienza di detto iniziatore nella reazione di polimerizzazione della composizione liquida della presente invenzione è notevolmente superiore a quella prevedibile per cui è sufficiente una quantità molto ridotta di detto iniziatore per consentire il raggiungimento di proprietà fisico-meccaniche idonee all'applicazione nel settore ottico.

Costituisce pertanto oggetto della presente invenzione una composizione liquida polimerizzabile per via radicalica in vetri organici, comprendente i seguenti componenti:

- 1) il prodotto ottenuto dalla transesterificazione del diallilcarbonato (A) con una



miscela di uno o più dioli (B) alifatici, lineari o ramificati contenenti da tre a dieci atomi di carbonio nella molecola, con un poliolo (C) alifatico, lineare o ramificato contenente da quattro a venti atomi di carbonio e da tre a sei gruppi ossidrilici nella molecola, detto componente 1) essendo presente in una concentrazione globale compresa tra 70 e 100% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2);

2) uno o più comonomeri di tipo acrilico, metacrilico, vinilico o allilico o loro miscele, in una concentrazione globale compresa tra 0 e 30% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2);

3) un iniziatore di polimerizzazione o una miscela di due o più iniziatori di polimerizzazione stabili a temperatura ambiente appartenenti alla classe dei perossidi, in una concentrazione globale compresa tra 0,03 a 0,1 moli per 1 Kg di composizione finale.

Componente 1).

Nel componente 1) della composizione liquida polimerizzabile per via radicalica in vetri organici, oggetto della presente invenzione, il rapporto molare $A/(B+C)$ è compreso tra 2/1 e 5/1 e la quantità di (C)

nella miscela (B+C) è pari o inferiore al 25% in peso sul totale di detta miscela (B+C).

Preferibilmente, nel componente 1) della composizione liquida oggetto della presente invenzione, il rapporto molare A/(B+C) è compreso tra 2,5/1 e 4/1 e la quantità di (C) nella miscela (B+C) è compresa tra il 5% in peso ed il 20% in peso sul totale di detta miscela (B+C).

Dioli (B) utili allo scopo della presente invenzione, come già detto sopra, sono i dioli alifatici lineari o ramificati, contenenti da tre a dieci atomi di carbonio nella molecola.

Esempi specifici di dioli (B) utili allo scopo della presente invenzione sono : glicole dietilenico, glicole trietilenico, glicole tetraetilenico, 1,4-butandiolo, 1,6-esandiolo, 1,3-propandiolo, neopentilglicole, dipropilenglicole, 2,2,4-trimetil-1,3-pentandiolo, 1,4-cicloesandimetanolo, ecc.

Dioli preferiti allo scopo della presente invenzione sono il glicole dietilenico ed il neopentilglicole.

Polioli (C) utili allo scopo della presente invenzione, come già detto sopra, sono i polioli alifatici, lineari o ramificati contenenti da quattro

a venti atomi di carbonio e da tre a sei gruppi ossidrilici nella molecola.

Esempi specifici di polioli (C) utili allo scopo della presente invenzione sono: pentaeritrite, trimetilolpropano, dipentaeritrite, ditrimetilolpropano, tris(idrossietil) isocianurato ecc.

Polioli preferiti allo scopo della presente invenzione sono: pentaeritrite e trimetilolpropano.

Il Componente 1) della composizione liquida polimerizzabile oggetto della presente invenzione è ottenuto a partire dal diallil carbonato (A) e dalla miscela (B+C) operando in condizioni di transesterificazione.

In particolare si opera ponendo a contatto i reagenti, nelle proporzioni sopra indicate, e facendo reagire gli stessi a temperature comprese tra 80°C e 160°C, preferibilmente tra 90°C e 130°C, in presenza di un catalizzatore di tipo alcalino, eliminando continuamente l'alcool allilico che si forma quale sottoprodotto della reazione.

Catalizzatori alcalini utili allo scopo della presente invenzione sono: idrossidi, carbonati ed alcolati di metalli alcalini, basi organiche e resine a scambio ionico basiche.

Esempi specifici di catalizzatori di tipo alcalino utili allo scopo della presente invenzione sono: idrossido di sodio, carbonato sodico, metilato di sodio.

Il catalizzatore viene convenientemente utilizzato in quantità pari ad almeno 1 ppm (parti per milione in peso) rispetto alla somma dei pesi dei componenti (B+C) e, preferibilmente, in quantità comprese tra lo 0,01% e lo 0,3% in peso.

La suddetta reazione di transesterificazione viene convenientemente condotta ad una pressione tale da portare il sistema all'ebollizione alla temperatura di lavoro prescelta, in modo da favorire l'eliminazione dell'alcool allilico dalla miscela di reazione: ad esempio valori di pressione compresi tra 60 mbar e 1030 mbar, preferibilmente tra 60 mbar e 500 mbar, sono adatti allo scopo.

Operando nelle condizioni sopra descritte, i tempi di reazione sono, generalmente, compresi tra 0,5 ore e 20 ore, preferibilmente tra 0,5 ore e 3 ore.

Dopo raffreddamento, la suddetta miscela di reazione viene lavata con acqua per asportare le piccole quantità di catalizzatore residuo e, dopo smiscelazione e separazione della fase acquosa, si



procede eliminando per distillazione il diallil carbonato non reagito, riscaldando fino a temperature dell'ordine di 130°C, sotto pressione decrescente con valori finali compresi tra 0,1 mbar e 20 mbar, preferibilmente tra 0,5 mbar e 2 mbar, ottenendosi, come residuo, la composizione desiderata. La composizione così ottenuta viene infine sottoposta a filtrazione previo eventuale trattamento con carbone attivo.

Il Componente 1) della composizione polimerizzabile, oggetto della presente invenzione, è liquido a temperatura ambiente e presenta valori di viscosità compresi tra 15 cSt e 300 cSt e valori di densità compresi tra 1,1 g/ml e 1,3 g/ml. Il Componente 1) della composizione liquida polimerizzabile oggetto della presente invenzione è una miscela complessa che contiene allil carbonati dei componenti (B) e (C), in forma monomerica e oligomerica, nonché allil carbonati oligomerici misti di detti componenti (B) e (C), le quantità relative di detti costituenti del componente 1) della composizione polimerizzabile dipendendo principalmente dai rapporti prescelti dei reagenti (A), (B) e (C).

Componente 2).

Nella composizione liquida polimerizzabile per via radicalica in vetri organici, oggetto della presente invenzione, il componente 2) è costituito da uno o più comonomeri di tipo acrilico, metacrilico, vinilico o allilico o loro miscele.

Esempi non limitativi di comonomeri utili allo scopo della presente invenzione, sono: metacrilato di metile, acetato di vinile, esteri vinilici degli acidi versatici 9 e 10 noti commercialmente come VeoVa 9 e VeoVa 10, triallil cianurato, triallil isocianurato, diallil maleato, diallil fumarato, diallil isoftalato, diallil tereftalato, ecc.

Detti comonomeri sono presenti in concentrazione globale compresa tra 0 e 30% in peso nella miscela dei Componenti 1) e 2) e preferibilmente in concentrazione compresa tra l'1 e il 20% in peso.

Componente 3).

Nella composizione liquida polimerizzabile per via radicalica in vetri organici, oggetto della presente invenzione, il componente 3) è un iniziatore di polimerizzazione o una miscela di due o più iniziatori di polimerizzazione stabili a temperatura ambiente, appartenenti alla classe dei perossidi.

Perossidi stabili a temperatura ambiente, utili allo scopo della presente invenzione, sono quelli che

hanno una temperatura stoccaggio non inferiore a +15°C.

Nell'ambito dei perossidi stabili a temperatura ambiente sopra menzionati, sono utili allo scopo della presente invenzione i dialchil-perossi-dicarbonati quali il di(4-t-butilcicloesil)perossi-dicarbonato e il dimiristil-perossi-dicarbonato. Tra questi, il preferito è il di(4-t-butilcicloesil)-perossi-dicarbonato (BCHPC).

Diacilperossidi utili allo scopo della presente invenzione sono dibenzoil-perossido, didecanoil-perossido, dilauroil-perossido. Tra questi, il preferito è il dibenzoil-perossido.

Altri perossidi stabili a temperatura ambiente, utili allo scopo della presente invenzione sono i perchetali, quali ad esempio: 1,1-di(t-butilperossi)cicloesano, 1,1-di(t-butilperossi)3,3,5 trimetilcicloesano, 1,1-di(t-amilperossi)-cicloesano. Tra questi il preferito è l'1,1-di(t-amilperossi)cicloesano.

Detti iniziatori di polimerizzazione possono essere usati singolarmente in composizioni polimerizzabili contenenti il Componente 2), mentre in composizioni polimerizzabili prive di detto Componente 2), i perossidi appartenenti alle classi

dei diacilperossidi e dei perchetali possono essere usati solo in combinazione con i dialchil-perossidicarbonati stabili a temperatura ambiente sopra menzionati.

Detti iniziatori di polimerizzazione sono presenti in concentrazione globale compresa tra 0,03 a 0,1 moli per 1 Kg di composizione finale.

La composizione liquida polimerizzabile oggetto della presente invenzione può eventualmente contenere uno o più additivi convenzionali quali, ad esempio, antiossidanti, stabilizzanti alla luce, lubrificanti, coloranti, pigmenti, assorbitori della luce ultravioletta (UV-absorbers), assorbitori delle radiazioni infrarosse (IR-absorbers), e simili, in quantità totale comunque non superiore a 1 parte in peso per ogni 100 parti in peso delle composizioni stesse. Esempi di additivi utili allo scopo della presente invenzione sono: fenoli stericamente impediti, ammine stericamente impediti, benzofenoni, benzotriazoli, fosfiti e fosfoniti organici, ecc.

La composizione oggetto della presente invenzione contenente, il componente 1), l'iniziatore di polimerizzazione, eventualmente il comonomero che costituisce il componente 2) ed eventualmente, uno o più additivi scelti tra quelli sopra menzionati,



viene trasformata nei relativi vetri organici operando a temperatura compresa tra 30°C e 120°C, con tempi di polimerizzazione che possono generalmente variare tra 1 ora e 100 ore.

I vetri organici così ottenuti sono particolarmente utili nella produzione di lenti oftalmiche, lenti da sole, schermi protettivi, oblò di visualizzazione, collettori e pannelli solari e fotovoltaici, substrati per dischi ottici, pannelli per "displays" e videoterminali: detti manufatti risultano quindi essere ulteriore oggetto della presente invenzione.

Come detto precedentemente, la quantità di iniziatore di polimerizzazione stabile a temperatura ambiente della composizione liquida della presente invenzione è significativamente inferiore sia alla quantità richiesta per la polimerizzazione del dietilenglicole bis(allilcarbonato), sia alla quantità ipotizzabile sulla base della densità di doppi legami polimerizzabili della composizione stessa, valore che può essere correlato in prima approssimazione allo shrinkage %.

I vetri organici ottenuti a partire dalla composizione oggetto della presente invenzione, sono dotati di eccellenti proprietà ottiche e fisico-

meccaniche, idonee all'applicazione nel settore ottico, e di gran lunga superiori alle proprietà ottiche e fisico-meccaniche ottenute, ove possibile, a partire da composizioni costituite da detti perossidi stabili a temperatura ambiente e dietilenglicole bis(allilcarbonato).

Le proprietà dei vetri organici così ottenuti sono anche inaspettatamente superiori a quelle ottenute a partire da monomeri con densità di doppi legami reattivi e quindi con valori di shrinkage simili a quelli delle composizioni della presente invenzione.

Tali proprietà e quindi i vantaggi della composizione secondo la presente invenzione risulteranno evidenti dagli esempi sperimentali comparativi che seguono, da non ritenersi in alcun modo limitativi della portata dell'invenzione stessa, nei quali la quantità di perossido effettivamente disponibile nella composizione polimerizzabile è espressa in termini molari per rendere meglio la portata dell'invenzione.

In detti esempi sono state preparate composizioni liquide polimerizzabili facendo reagire, in condizioni di transesterificazione, il diallil

carbonato (A) con miscele dei composti (B) e (C) come specificato negli esempi stessi.

Alcune composizioni prevedono anche l'impiego di un comonomero scelto tra quelli menzionati precedentemente come Componente 2).

Alle composizioni liquide così ottenute viene aggiunto l'iniziatore di polimerizzazione o miscele di iniziatori di polimerizzazione, tra quelli menzionati precedentemente come Componente 3), nelle quantità e proporzioni indicate negli esempi stessi.

Le composizioni contenenti l'iniziatore di polimerizzazione vengono trasformate, tramite polimerizzazione, in lastre piane e lenti oftalmiche, neutre e/o correttive mediante la tecnica nota come "casting". Operando secondo detta tecnica, le composizioni liquide contenenti l'iniziatore di polimerizzazione, vengono versate nella cavità di uno stampo costituito da due elementi di vetro ed avente una guarnizione distanziatrice in polivinilcloruro plastificato, in copolimero etilene-vinilacetato (EVA), in polietilene a bassa densità (LDPE), o altro materiale idoneo, compatibilmente con le condizioni di lavorazione.

Le composizioni liquide vengono quindi sottoposte a polimerizzazione mediante trattamento

termico in stufa a circolazione forzata, con innalzamento graduale della temperatura come indicato negli esempi sperimentali che seguono.

Al termine del suddetto trattamento, gli stampi vengono aperti e si recuperano i polimerizzati, i quali, in taluni casi, vengono sottoposti ad un ulteriore trattamento termico a 120°C in stufa (post curing). Sui polimerizzati così ottenuti vengono determinate le proprietà; in particolare, sulle lastre piane sono determinate le seguenti caratteristiche:

(a) Caratteristiche ottiche

- Indice di rifrazione ($n_{D_{20}}^D$) : misurato con rifrattometro di Abbe (ASTM D-512);
- Indice di giallo (YI), (ASTM D-1925), determinato con spettrofotometro Macbeth 1500 Plus e definito come:

$$YI = 100/Y \quad (1,277X - 1,06Z)$$

(b) Caratteristiche fisiche e meccaniche

- Densità: determinata con bilancia idrostatica alla temperatura di 20°C (ASTM D-792);
- Contrazione di volume in polimerizzazione (Shrinkage), calcolata con la seguente formula:

$$\% \text{ Shrinkage} = 100 \cdot (\text{Densità polimero} - \text{Densità monomero}) / \text{Densità polimero}$$



- Durezza Rockwell (M) misurata con durometro Rockwell (ASTM D-785);
- Resistenza all'urto Izod senza intaglio (ASTM D-256 modificato);
- Temperatura di deflessione sotto carico 1,82 MPa (HDT) (ASTM D-648).

Sulle lenti neutre e correttive vengono determinate le seguenti proprietà :

(c) Tingibilità

Viene determinata la capacità del materiale di adsorbire superficialmente un colorante mediante immersione di una lente neutra in un bagno acquoso nel quale viene disperso il colorante BPI gray.

A tale scopo la lente viene immersa in detto bagno di colorazione per 15-30 minuti a temperature comprese tra 80 e 85°C e, dopo risciacquo con acqua demineralizzata, viene determinata la trasmittanza della lente mediante misura della coordinata cromatica Y come descritto da CIE (1931) Standard Observer.

Dagli esempi sotto riportati, risulta chiaramente che le composizioni oggetto della presente invenzione, contenenti perossidi stabili a temperatura ambiente, permettono di ottenere vetri organici aventi caratteristiche uguali o migliorate

rispetto ai vetri organici dell'arte nota ottenuti dalla polimerizzazione del bis(allilcarbonato) del dietilenglicole e perossido IPP.

Risulterà inoltre anche chiaramente che con monomeri dell'arte nota, anche quelli caratterizzati da basso shrinkage in polimerizzazione, non è possibile ottenere vetri organici paragonabili a quelli della presente invenzione.

ESEMPIO 1

Viene di seguito descritta la sintesi di un Componente 1 secondo la presente invenzione.

In un pallone incamiciato a tre colli, munito di termometro ed agitatore magnetico e sormontato da una colonna di distillazione con 10 piatti forati aventi un diametro di 30 mm, vengono caricati:

- pentaeritrite (PE): 80 g (0,59 moli);
- dietilenglicole (DEG): 267 g (2,5 moli);
- neopentilglicole (NPG): 187 g (1,8 moli);
- diallil carbonato (DAC): 2173 g (15,3 moli);
- soluzione al 20% in peso di sodio metilato in metanolo: 2,0 ml.

La reazione viene condotta per 3 ore a temperature comprese tra 85°C e 120°C e ad una pressione decrescente da 200 mbar a 130 mbar,

distillando l'alcool allilico mano a mano che si forma (totale 749 ml; purezza > 99%).

Dopo raffreddamento, la miscela di reazione viene lavata con 2 porzioni di 500 ml di acqua demineralizzata.

Il DAC in eccesso viene distillato ad una pressione di circa 1 mbar, operando a temperatura crescente fino a 130°C: il prodotto ottenuto viene filtrato con filtro a membrana da 0,45 µm.

Si ottengono così 967 g di un prodotto liquido aventi le seguenti caratteristiche :

- Viscosità (25°C): 89 cSt;
- Densità (20°C): 1,165 g/ml;
- Indice di rifrazione $n_{D_{20}}^D$: 1,458;
- Colore Apha: 2.

Il suddetto prodotto è una complessa miscela costituita da: monomero e oligomeri del bis(allil carbonato) del glicole dietilenico, monomero e oligomeri del bis(allil carbonato) del glicole neopentilico, monomero e oligomeri del tetrakis(allil carbonato) della pentaeritrite, e di poli(allil carbonati) misti dei dioli e poliolo di cui sopra.

ESEMPIO 2

Viene di seguito descritta la sintesi di un ulteriore Componente 1, secondo la presente invenzione.

In un pallone incamiciato a tre colli, munito di termometro ed agitatore magnetico e sormontato da una colonna di distillazione con 10 piatti forati aventi un diametro di 30 mm, vengono caricati :

- pentaeritrite (PE): 34,5 g (0,25 moli);
- glicole dietilenico (DEG): 223 g (2,1 moli);
- diallil carbonato (DAC): 1000 g (7,04 moli);
- soluzione al 20% in peso di sodio metilato in metanolo: 1,2 ml.

La reazione viene condotta per 3 ore a temperature comprese tra 83°C e 120°C e ad una pressione decrescente da 200 mbar a 130 mbar, distillando l'alcool allilico mano a mano che si forma (totale 346 ml ; purezza > 99%).

Dopo raffreddamento, la miscela di reazione viene lavata con 2 porzioni di 500 ml di acqua demineralizzata.

Il DAC in eccesso viene distillato ad una pressione di circa 1 mbar, operando a temperatura crescente fino a 130°C : il prodotto ottenuto viene filtrato con filtro a membrana da 0,45 µm.



Si ottengono così 525 g di un prodotto liquido aventi le seguenti caratteristiche :

- Viscosità (25°C): 75 cSt;
- Densità (20°C): 1,192 g/ml;
- Indice di rifrazione n_{20}^D : 1,461;
- Colore Apha : 2.

Il suddetto prodotto è una complessa miscela costituita da : monomero e oligomeri del bis(allil carbonato) del glicole dietilenico, monomero e oligomeri del tetrakis(allil carbonato) della pentaeritrite, e di poli(allil carbonati) misti del diolo e poliolo di cui sopra.

ESEMPIO 3

Vengono preparate le composizioni liquide n° 1 e 2, polimerizzabili in vetri organici dotati di buone proprietà ottiche e fisico-meccaniche secondo la presente invenzione, costituite dal prodotto dell'esempio 1 quale componente 1), da VeoVa 9 quale componente 2), in presenza dell'iniziatore di (4-t-butilcicloesil)-perossi-dicarbonato (BCHPC), nei rapporti indicati nella Tabella 1. Il prodotto VeoVa 9 è un prodotto commerciale costituito da una miscela di esteri vinilici dell'acido versatico 9, commercializzato dalla società Resolution.

Nella stessa Tabella sono riportate a scopo comparativo anche le composizioni dell'arte nota (A) a base di bis(allil carbonato) del dietilenglicole (BAC del DEG) e iniziatore perossidico IPP, e la composizione (B) a base del prodotto dell'esempio 2 della presente invenzione e iniziatore perossidico CHPC.

Tabella 1

<u>Composizione</u>	1	2	Compar.A	Compar.B
Prodotto Esempio 1 (% peso)	85	80	-	-
Veova 9 (% peso)	15	20	-	-
BCHPC (moli per 1 Kg soluzione)	0,075	0,075	-	-
BAC del DEG (% peso)	-	-	100	-
Prodotto Esempio 2 (% peso)	-	-	-	100
Iniziatore di polimerizzazione (moli per 1 Kg soluzione)	-	-	IPP 0,146	CHPC 0,175
Colore Apha	2	2	1	2
Viscosità (25°C, cSt)	39	30	13,7	75
Indice di rifrazione (n ^v ₂₀)	1,455	-	1,452	1,461
Densità (20°C, g/ml)	1,116	1,099	1,150	1,192

Le suddette composizioni vengono sottoposte a polimerizzazione mediante trattamento termico in stufa a circolazione forzata, con innalzamento graduale della temperatura da 40°C a 80°C in 20 ore e, sui vetri organici così ottenuti, vengono

determinate le caratteristiche riportate in Tabella 2.

Tabella 2

<u>Composizione</u>	1	2	Compar. (A)	Compar. (B)
Densità (20°C, g/ml)	1,238	1,220	1,311	1,328
Shrinkage, %	9,9	9,9	12,1	10,2
YI ^(a)	1,04	0,96	1,5	1,6
Durezza Rockwell ^(a)	101	101	100	100
Resistenza urto Izod, (KJ/m ²)	19,3	16,2	20	30
HDT, (°C)	53	56	60	61
N ^D ₂₀	1,494	1,489	1,499	1,500
Tingibilità, (15' a 85°C), Y (colore lente)	33,4 omogeneo	33,8 omogeneo	35,9 omogeneo	42,9 omogeneo

(a) aggiunto 2-idrossi, 4-metossi benzofenone (0,1% in peso). Spessore lastra 5 mm

Dall'esame della Tabella 2, risulta evidente che le proprietà delle composizioni n° 1 e 2 della presente invenzione sono simili e in qualche caso migliorative rispetto alla composizione (A) e (B) dell'arte nota, nonostante la concentrazione di perossido in termini molari sia solo la metà.

In particolare, la composizione n° 1, a parità di valori di durezza e tingibilità, proprietà

fondamentali per il settore ottico, esibisce un valore di YI estremamente favorevole.

Si dimostra così l'elevata e sorprendente efficienza dell'inziatore perossidico nelle composizioni della presente invenzione, con tutti i vantaggi di sicurezza ed economici derivanti dalla sua superiore stabilità.

ESEMPIO 4

In Tabella 3 sono riportate a scopo comparativo anche le composizioni (C) e (D) contenenti rispettivamente come componenti 1) BAC del DEG e un prepolimero a basso shrinkage del BAC del DEG, ottenuto sottoponendo a reazione di prepolymerizzazione controllata alla temperatura di 95 °C, il monomero BAC del DEG in presenza dello 0,1% di 1,1-di(ter.butilperossi)-3,3,5-trimetilcicloesano fino ad ottenere una viscosità pari a circa 150 cSt. A tali composizioni sono aggiunti VeoVa 9 e l'inziatore perossidico BCHPC nelle proporzioni indicate, quali rispettivamente componente 2) e componente 3) della presente invenzione.

Le suddette composizioni vengono sottoposte a polimerizzazione mediante trattamento termico come nell'esempio che precede e, sui vetri organici così



ottenuti, vengono determinate le caratteristiche riportate in Tabella 3.

Tabella 3

<u>Composizione</u>	Compar. (C)	Compar. (D)
BAC del DEG monomero (% peso)	85	-
BAC del DEG prepolimero (% peso)	-	85
Veova 9 (% peso)	15	15
BCHPC (moli per 1 Kg soluzione)	0,075	0,075
Densità (20°C, g/ml)	1,243	1,254
Shrinkage, %	11,6	10,4
YI ^(a)	0,78	0,80
Durezza Rockwell ^(a)	54	61
HDT (°C)	< 35	36
n _D ²⁰	1,495	1,493
Tingibilità (15' a 85°C), Y (Colore lente)	6,3 (disomogeneo)	non valutabile (disomogeneo)

^(a) aggiunto 2-idrossi, 4-metossi benzofenone (0,1% in peso). Spessore lastra 5 mm

Dalla Tabella precedente, risulta evidente che i vetri organici ottenuti a partire dai prodotti dell'arte nota BAC del DEG monomero e prepolimero e l'iniziatore perossidico BCHPC, anche in presenza di

Veova 9, non presentano proprietà utili allo scopo della presente invenzione.

In particolare si dimostra quanto affermato precedentemente, vale a dire che la composizione dell'arte nota caratterizzata da un valore di shrinkage e quindi densità di doppi legami reattivi simili a quelli delle composizioni 1) e 2) della presente invenzione, non consente di ottenere vetri organici con proprietà idonee all'applicazione nel settore ottico.

ESEMPIO 5

Vengono preparate le composizioni liquide polimerizzabili n° 3, 4, 5 e 6 secondo la presente invenzione costituite dal prodotto dell'esempio 1, vinil acetato (VA) o metil metacrilato (MMA) e iniziatore perossidico BCHPC, nei rapporti indicati nella Tabella 4.

Nella stessa Tabella è riportata a scopo comparativo anche la composizione (E) a base di BAC del DEG, VA e BCHPC.

Le suddette composizioni vengono sottoposte a polimerizzazione come descritto nell'esempio precedente e, sui vetri organici così ottenuti, vengono determinate le caratteristiche riportate in Tabella 4.

Tabella 4

<u>Composizione</u>	3	4	5	6	Compar. (E)
Prodotto Esempio 1(% peso)	90	90	90	90	-
VA (% peso)	10	10	10	-	10
MMA (% peso)	-	-	-	10	-
BCHPC, moli per 1 Kg soluzione	0,053	0,058	0,063	0,063	0,063
BAC del DEG (% peso)	-	-	-	-	90
Densità (20°C, g/ml)	1,285	1,286	1,286	1,277	-
Shrinkage, %	11,5	11,6	11,6	11,0	-
YI ^(a)	0,94	1,01	1,03	0,98	0,76
Durezza Rockwell ^(a)	104	106	106	100	71
n _D ²⁰	1,494	1,494	1,494	1,496	1,497
Tingibilità, (15' a 85°C), Y (colore lente)	24,7 omogeneo	31,8 omogeneo	35,7 omogeneo	26,0 omogeneo	5,4 disomogeneo

^(a) aggiunto 2-idrossi, 4-metossi benzofenone (0,1% in peso). Spessore lastra 5 mm

Dai dati sopra riportati, si conferma l'elevata efficienza dell'iniziatore perossidico nelle composizioni della presente invenzione che, anche in concentrazione molto ridotte, permette di ottenere

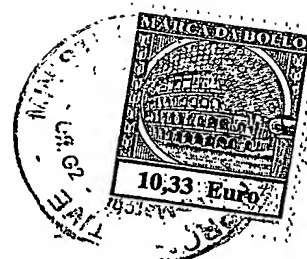
vetri organici dotati di ottime proprietà ottiche e fisico-meccaniche.

ESEMPIO 6

Vengono preparate le composizioni liquide polimerizzabili n° 7 e 8 della presente invenzione costituite dal prodotto dell'esempio 1, VeoVa 9 e miscele di iniziatori perossidici BCHPC e 1,1-di(t-amilperossi)cicloesano (TAPC), nei rapporti indicati nella Tabella 5.

Con le suddette composizioni vengono preparate lenti neutre di spessore 2,4 mm e lenti semifinite mediante polimerizzazione in bagno ad acqua, e sulle lenti così ottenute, vengono determinate le caratteristiche riportate in Tabella 5.

Tabella 5



<u>Composizione</u>	7	8
Prodotto Esempio 1 (% peso)	85	85
VeoVa 9 (% peso)	15	15
BCHPC (moli per 1 Kg soluzione)	0,05	0,05
TAPC (puro, moli per 1 Kg soluzione)	0,01	0,009
Ciclo di polimerizzazione	45 - 95°C in 20 ore	48 - 97°C in 20 ore

Polimerizzati		lente neutra 2,4 mm	semifinita 16 mm	lente neutra 2,4 mm	semifinita 10 mm
Durezza ^(a)	tal quale	93	100	91	97
Rockwell	post curing 2 ore 110°C	96	105	94	104
Tingibilità, (15' a 85°C), Y (colore lente)		35,6 omogeneo	-	30,5 omogeneo	-

^(a) aggiunto 2-idrossi, 4-metossi benzofenone (0,1% in peso). Spessore lastra 5mm

ESEMPIO 7

Viene preparata la composizione liquida polimerizzabile n° 9 della presente invenzione costituita dal prodotto dell'esempio 2, VeoVa 9 e l'iniziatore perossidico BPO nel rapporto indicato nella Tabella 6.

A scopo comparativo viene preparata una analoga composizione dell'arte nota (Comparativa (F)), a base di BAC del DEG e l'iniziatore perossidico BPO.

Con le suddette composizioni vengono preparate lastre piane di spessore 5 mm e lenti neutre di spessore 2,4 mm, mediante polimerizzazione in bagno ad acqua con innalzamento graduale della temperatura da 55°C a 90°C in 21 ore e, sui vetri organici così

ottenuti, vengono determinate le caratteristiche riportate in Tabella 6.

Tabella 6

<u>Composizione</u>		9		Compar. (F)	
Prodotto Esempio 2 (% peso)		90		-	
VeoVa 9 (% peso)		10		-	
BAC del DEG (% peso)		-		100	
BPO (puro) (moli per 1 Kg soluzione)		0,050		0,104	
Polimerizzati		lente neutra	lastra	lente neutra	lastra
YI ^(a)	tal quale	-	1,00	-	2,80
	post curing 2 ore 110°C	-	1,31	-	4,12
Durezza ^(a) Rockwell	tal quale	95	99	97	101
	post curing 2 ore 110°C	-	101	-	99
Tingibilità, (30' a 80°C), Y (Colore lente)		30,6 omogeneo	-	non valutabile disomogeneo	35,0 omogeneo

^(a) aggiunto 2-idrossi, 4-metossi benzofenone (0,1% in peso). Spessore lastra 5mm

Sulla composizione n° 9 della presente invenzione, previa aggiunta dello 0.05% in peso di 2-

idrossi-4-metossi-benzofenone, viene determinata anche la resistenza alle radiazioni UV mediante esposizione all'esterno di lastre piane di spessore 5mm.

L'invecchiamento dei polimerizzati è valutato mediante misura dello YI dopo prefissati intervalli di tempo di esposizione.

I risultati sono raccolti in Tabella 7 in confronto con composizioni dell'arte nota.

Tabella 7

Composizione	9	Compar. (F)	Compar. (A)
	YI	YI	YI
Tempi di esposizione (ore)			
0	1,42	2,58	1,40
3	1,40	3,49	1,41
7	1,40	4,12	1,40
14	1,44	5,13	1,44
21	1,47	7,35	1,43
50	1,52	9,24	1,44

Dall'esame dei dati delle Tabelle 6 e 7, risulta evidente che i polimerizzati della composizione n° 9 oggetto della presente invenzione, ottenuti con

quantità ridotte dell'iniziatore BPO, presentano valori di YI e di resistenza UV notevolmente migliori rispetto alla composizione (F) dell'arte nota e prossimi a quelli della composizione comparativa (A) dell'arte nota contenente l'iniziatore perossidico IPP, consentendo quindi il suo utilizzo nel settore ottico.

Ing. Barzanò & Zanardo Milano S.p.A.



RIVENDICAZIONI

1. Composizione liquida polimerizzabile, per via radicalica in vetri organici, comprendente i seguenti componenti:

- 1) il prodotto ottenuto dalla transesterificazione del diallilcarbonato (A) con una miscela di uno o più dioli (B) alifatici, lineari o ramificati contenenti da tre a dieci atomi di carbonio nella molecola, con un poliolo (C) alifatico, lineare o ramificato contenente da quattro a venti atomi di carbonio e da tre a sei gruppi ossidrilici nella molecola; detto componente 1) essendo presente in una concentrazione globale compresa tra 70 e 100% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2);
- 2) uno o più comonomeri di tipo acrilico, metacrilico, vinilico o allilico o loro miscele, in una concentrazione globale compresa tra 0 e 30% in peso rispetto al peso totale della miscela dei Componenti 1) e 2);
- 3) un iniziatore di polimerizzazione o una miscela di due o più iniziatori di polimerizzazione stabili a temperatura ambiente appartenenti alla classe dei perossidi, in una concentrazione globale

compresa tra 0,03 a 0,1 moli per 1 Kg di composizione finale.

2. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che il rapporto molare $A/(B+C)$ è compreso tra 2/1 e 5/1 e la quantità di (C) nella miscela (B+C) è pari o inferiore al 25% in peso sul totale di detta miscela (B+C).

3. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che il rapporto molare $A/(B+C)$ è compreso tra 2,5/1 e 4/1 e la quantità di (C) nella miscela (B+C) è compresa tra il 5% in peso ed il 20% in peso sul totale di detta miscela (B+C).

4. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che i dioli (B) sono glicole dietilenico, glicole trietilenico, glicole tetraetilenico, 1,4-butandiolo, 1,6-esandiolo, 1,3-propandiolo, neopentilglicole, dipropilenglicole, 2,2,4-trimetil-1,3-pentandiolo, 1,4-cicloesandimetanolo.

5. Composizione secondo la rivendicazione 4, caratterizzata dal fatto che i dioli sono il glicole dietilenico ed il neopentilglicole.

6. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che i polioli (C) sono

pentaeritrite, trimetilolpropano, dipentaeritrite, ditrimetilol-propano, tris(idrossietil) isocianurato.

7. Composizione secondo la rivendicazione 6, caratterizzata dal fatto che i polioli (C) sono pentaeritrite e trimetilolpropano.

8. Composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti, caratterizzata dal fatto che il componente 1) è ottenuto a partire dal diallil carbonato (A) e dalla miscela (B+C) operando in condizioni di transesterificazione, a temperatura compresa tra 80°C e 160°C, in presenza di un catalizzatore di tipo alcalino, eliminando continuamente l'alcool allilico che si forma quale sottoprodotto della reazione.

9. Composizione secondo la rivendicazione 8, caratterizzata dal fatto che la transesterificazione è condotta a temperatura compresa tra 90°C e 130°C e il catalizzatore alcalino è scelto tra idrossidi, carbonati ed alcolati di metalli alcalini, basi organiche, resine a scambio ionico basiche.

10. Composizione secondo la rivendicazione 9, caratterizzata dal fatto che il catalizzatore è scelto tra idrossido di sodio, carbonato sodico, metilato di sodio.

11. Composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni da 8 a 10, caratterizzata dal fatto che il catalizzatore è utilizzato in quantità pari ad almeno 1 ppm (parti per milione in peso) rispetto alla somma dei pesi dei componenti (B+C).

12. Composizione secondo la rivendicazione 11, caratterizzata dal fatto che il catalizzatore è utilizzato in quantità comprese tra lo 0,01% e lo 0,3% in peso.

13. Composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni da 8 a 12, caratterizzata dal fatto che la reazione di transesterificazione è condotta a valori di pressione compresi tra 60 mbar e 1030 mbar e per tempi di reazione compresi tra 0,5 ore e 20 ore.

14. Composizione secondo la rivendicazione 13, caratterizzata dal fatto che la reazione di transesterificazione è condotta a valori di pressione compresi tra 60 mbar e 500 mbar.

15. Composizione secondo la rivendicazione 13, caratterizzata dal fatto che la reazione di transesterificazione è condotta per tempi di reazione compresi tra 0,5 ore e 3 ore.

16. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che il componente 2) è



scelto tra metacrilato di metile, acetato di vinile, esteri vinilici degli acidi versatici 9 e 10 noti commercialmente come VeoVa 9 e VeoVa 10, triallil cianurato, triallil isocianurato, diallil maleato, diallil fumarato, diallil isoftalato, diallil tereftalato e relative miscele.

17. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che il componente 2) è presente in concentrazione globale compresa tra 1 e 20% in peso nella miscela dei Componenti 1) e 2).

18. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che il componente 3) è scelto tra perossidi che hanno una temperatura stoccaggio non inferiore a +15°C.

19. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto i perossidi sono scelti tra dialchil-perossi-dicarbonati, diacil-perossidi e/o perchetali.

20. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che i dialchil-perossi-dicarbonati sono il di(4-t-butilcicloesil)perossi-dicarbonato e il dimiristil-perossi-dicarbonato.

21. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che il dialchil-perossi-

dicarbonato è il di(4-t-butilcicloesil)-perossidicarbonato (BCHPC).

22. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che i diacil-perossidi sono dibenzoil-perossido, didecanoil-perossido, dilauroil-perossido.

23. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che il diacil-perossido è il dibenzoil-perossido.

24. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che i perchetali sono 1,1-di(t-butilperossi)-cicloesano, 1,1-di(t-butilperossi)-3,3,5-trimetilcicloesano, 1,1-di(t-amilperossi)-cicloesano.

25. Composizione secondo la rivendicazione 19, caratterizzata dal fatto che il perchetale è 1,1,1-di(t-amilperossi)-cicloesano.

26. Composizione secondo la rivendicazione 1, caratterizzata dal fatto che, quando il Componente 2) è assente, i diacil-perossidi e/o i perchetali sono usati in combinazione con i dialchil-perossidicarbonati.

27. Composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti, caratterizzata dal fatto di contenere uno o più additivi convenzionali quali

antiossidanti, stabilizzanti alla luce, lubrificanti, coloranti, pigmenti, assorbitori della luce ultravioletta (UV-absorbers), assorbitori delle radiazioni infrarosse (IR-absorbers), e simili, in quantità totale comunque non superiore a 1 parte in peso per ogni 100 parti in peso delle composizioni stesse.

28. Composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti, caratterizzata dal fatto di essere trasformata nei relativi vetri organici operando a temperatura compresa tra 30°C e 120°C, con tempi di polimerizzazione che variano tra 1 ora e 100 ore.

29. Vetri organici ottenibili mediante polimerizzazione di una composizione secondo una qualsiasi delle rivendicazioni precedenti.

30. Lenti oftalmiche, lenti da sole, schermi protettivi, oblò di visualizzazione, collettori e pannelli solari e fotovoltaici, substrati per dischi ottici, pannelli per "displays" e videoterminali ottenibili dalla lavorazione dei vetri organici secondo la rivendicazione 29.

Ing. Barzanò & Zanardo Milano S.p.A.

I MANDATARI:

(firma)

(per sé e per gli altri)

